

## ANALISIS STRUKTUR DAN KOMPOSISI FASA SERBUK $\text{Mg}_2\text{TiO}_4$

Sakinatus Zahro<sup>1</sup>, Frida U. Ermawati<sup>2</sup>

<sup>1,2</sup>Jurusan Fisika, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Negeri Surabaya

Email: <sup>1</sup>[sakinatuszahro@mhs.unesa.ac.id](mailto:sakinatuszahro@mhs.unesa.ac.id); <sup>1</sup>[sakinazahro@gmail.com](mailto:sakinazahro@gmail.com)

<sup>2</sup>[frida.ermawati@unesa.ac.id](mailto:frida.ermawati@unesa.ac.id)

### Abstrak

Telah dilakukan sintesis serbuk  $\text{Mg}_2\text{TiO}_4$  (disingkat MTO) dengan metode pencampuran larutan, dengan bahan awal berupa serbuk logam Mg dan Ti (*Merck*) dan pelarut HCl. Serbuk MTO dikalsinasi pada temperatur 1000 °C selama 4 jam. Hasil uji XRD menunjukkan bahwa serbuk MTO 1000 berstruktur  $\text{MgTiO}_3$  (No. PDF 06-0494), MgO (No. PDF 45-0946), dan  $\text{Mg}_2\text{TiO}_4$  (No. PDF 25-1157). Hasil tersebut didukung oleh data FTIR. Fasa  $\text{Mg}_2\text{TiO}_4$  terbentuk dengan persentase molar sebesar  $(5,75 \pm 0,12)\%$ . Data distribusi ukuran partikel dari sampel uji juga disertakan.

**Kata Kunci:** metode pencampuran larutan, MTO,  $\text{Mg}_2\text{TiO}_4$ .

### Abstract

Synthesis of  $\text{Mg}_2\text{TiO}_4$  (abbreviated MTO) has been carried out by liquid mixing method from Mg and Ti (*Merck*) metal powders as the starting materials and HCl as a solvent. MTO powder was calcined at 1000 °C for 4h. The XRD results showed that MTO 1000 has the structure of  $\text{MgTiO}_3$ , MgO and  $\text{Mg}_2\text{TiO}_4$ . The  $\text{Mg}_2\text{TiO}_4$  phase was formed very minor with a molar percentage of  $(5.75 \pm 0.12) \%$ . This result is supported by FTIR data. The particle size distribution data from the test sample is also included.

**Keywords:** liquid mixing method, MTO,  $\text{Mg}_2\text{TiO}_4$ .

### PENDAHULUAN

Bahan dielektrik keramik umumnya dipergunakan sebagai komponen elektronika pada sistem-sistem komunikasi pada daerah frekuensi gelombang mikro, seperti filter resonator, antena, radar dan sistem pemosisi global (SPG). Dielektrik keramik  $\text{Mg}_2\text{TiO}_4$  (*qandilite*) adalah salah satu fasa dari magnesium titanate yang berstruktur *inverse spinel*, memiliki *space grup* Fd-3m (Wechsler and Von Dreele 1989; Bhuyan et al., 2013). Magnesium Orhotitanate atau  $\text{Mg}_2\text{TiO}_4$  banyak digunakan untuk berbagai aplikasi pada daerah gelombang mikro. Ye et al., (2013) melaporkan bahwa keramik berbasis  $\text{Mg}_2\text{TiO}_4$  banyak dimanfaatkan sebagai resistor panas, bahan dielektrik untuk teknologi komunikasi gelombang mikro, kapasitor untuk kompensasi suhu. Sedangkan Petrova et al., (1997) dan Belous et al., (2006, 2007) melaporkan bahwa keramik  $\text{Mg}_2\text{TiO}_4$  merupakan salah satu bahan dielektrik terkemuka untuk berbagai aplikasi gelombang mikro dengan konstanta dielektrik ( $\epsilon_r$ ) 13–14, faktor kualitas tinggi ( $Q \times f$ ) ~150.000 GHz pada frekuensi 10 GHz, dan koefisien frekuensi resonansi ( $\tau_f$ ) -50 ppm/°C.

Perolehan-perolehan hasil di atas telah mendorong beberapa peneliti untuk mempelajari lebih lanjut tentang fabrikasi serbuk keramik  $\text{Mg}_2\text{TiO}_4$ . *Solid-state reaction* merupakan salah satu metode fabrikasi serbuk keramik yang umum digunakan untuk mensintesis serbuk  $\text{Mg}_2\text{TiO}_4$  atau disingkat MTO. Petrova et al., (1997) dan Belous et al., (2006) berhasil mensintesis serbuk MTO menggunakan metode *solid-state reaction*, namun dibutuhkan temperatur sinter tinggi (di atas 1300 °C). Selain itu masih ditemukan fasa sekunder ( $\text{MgTiO}_3$ ) yang sulit dihindari. Beberapa peneliti juga melaporkan hasil sintesis serbuk MTO dengan berbagai metode, diantaranya metode *high energy ball milling* (Cheng et

al., 2015), dimana fasa  $\text{Mg}_2\text{TiO}_4$  berhasil diperoleh pada temperatur kalsinasi 1000 °C. Temperatur ini jauh lebih rendah dibandingkan menggunakan metode *solid-state reaction* (Petrova et al., 1997). Silva et al., (2005) dengan metode *polymeric precursor* pada temperatur kalsinasi 1200 °C memperoleh fasa  $\text{Mg}_2\text{TiO}_4$  sebagai fasa utama, dan  $\text{MgTiO}_3$  sebagai fasa sekunder. Bhuyan et al., (2013) telah melakukan sintesis serbuk MTO dengan metode *mechanical*. Serbuk MTO disinter pada temperatur 1300, 1325, 1400 °C dan memperoleh fasa tunggal tanpa impuritas. Dari metode-metode tersebut ternyata untuk memperoleh fasa  $\text{Mg}_2\text{TiO}_4$  dibutuhkan temperatur kalsinasi dan sinter yang tinggi.

Metode pencampuran larutan (*liquid mixing method*) telah diperkenalkan sebagai salah satu metode alternatif yang digunakan beberapa peneliti untuk fabrikasi serbuk prekursor pada sistem yang berbeda, yaitu: (Zhang et al., 2010) pada sistem  $\text{LiNi}_{1/3}\text{Mn}_{1/3}\text{Co}_{2/3}\text{O}_2$ , (Xu et al., 2002) pada sistem  $\text{Ba}(\text{Mg}_{1/3}\text{Ta}_{2/3})\text{O}_3$ , (Ermawati et al., 2015) pada sistem  $\text{Mg}_{0.8}\text{Zn}_{0.2}\text{TiO}_3$  dan (Ermawati et al., 2016) pada sistem  $\text{Mg}_{1-x}\text{Zn}_x\text{TiO}_3$ ,  $x = 0-0.5$ . Namun metode pencampuran larutan ini belum pernah dicoba untuk sintesis serbuk MTO amorf.

### METODE

#### A. Material

Bahan awal yang digunakan dalam penelitian ini adalah serbuk logam Mg dan Ti (*Merck*) dan HCl 37% 12 M.

#### B. Preparasi Sampel

Dalam penelitian ini, serbuk MTO disintesis menggunakan metode pencampuran larutan (*liquid mixing method*). Preparasi sampel dilakukan dengan cara

melarutkan masing-masing serbuk Mg dan Ti kedalam larutan HCl membentuk larutan  $MgCl_2$  dan  $TiCl_4$ . Kedua larutan yang terbentuk kemudian dicampur menjadi satu, diaduk secara konstan selama 2 jam sampai homogen, kemudian dikeringkan diatas hotplate stirer pada temperatur 100-110 °C sampai kering berwarna putih keungguhan (mengerak), selanjutnya dilakukan penggerusan untuk mendapatkan serbuk MTO.

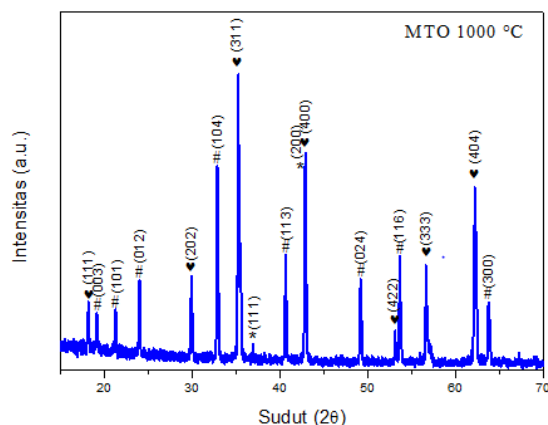
### C. Karakterisasi Sampel

Serbuk hasil sintesis kemudian dikalsinasi pada temperatur 1000 °C. Serbuk hasil kalsinasi kemudian dikarakterisasi XRD untuk mengetahui fasa-fasa apa saja yang terdapat dalam sampel menggunakan alat XRD *Bragg-Brentano Philips X'pert Diffractometer* dengan radiasi Cu-K $\alpha$  dengan rentang sudut 15-70° dengan langkah 0,02°/menit dan posisi detektor zero 0,023 serta pengukuran dilakukan pada temperatur ruang. Uji FTIR dilakukan untuk mengetahui ikatan-ikatan kimia di dalam sampel uji menggunakan alat *Thermo-Scientific FT-IR spectrometer* dengan rentang bilangan gelombang=400-4000  $cm^{-1}$ . Sedangkan uji PSA dilakukan dengan Zetasizer Nano Series Software Version 7.01, Malvern Instrument® untuk mengetahui distribusi ukuran partikel pada sampel.

## HASIL DAN PEMBAHASAN

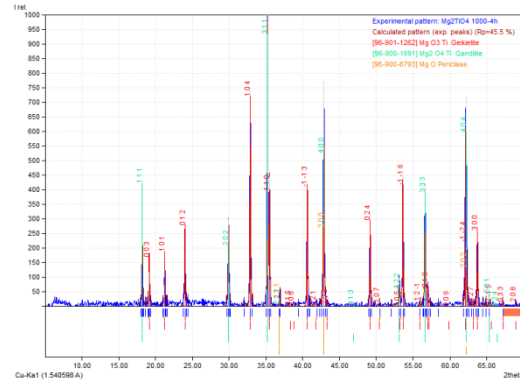
### A. Identifikasi Fasa Menggunakan Program Match!

Analisis kualitatif atau identifikasi fasa dilakukan menggunakan program *Match!* Gambar 1 menunjukkan pola XRD serbuk MTO hasil kalsinasi pada temperatur 1000 °C. Proses identifikasi fasa dilakukan dengan cara mencocokkan puncak-puncak difraksi pada setiap posisi 2 $\theta$  antara puncak terukur dengan puncak-puncak difraksi yang sesuai yang ada pada *database PDF (Powder Diffraction File) Match!*



**Gambar 1.** Pola XRD serbuk MTO pada temperatur kalsinasi 1000 °C selama 4 jam.

Gambar 1 menunjukkan pola XRD dari sampel MTO 1000 dengan simbol dan *hkl*. Pada gambar tersebut, puncak-puncak difraksi dengan simbol ♥ menyatakan puncak-puncak difraksi milik fasa  $Mg_2TiO_4$ , sedangkan simbol # menyatakan puncak-puncak difraksi milik fasa  $MgTiO_3$ . dan simbol \* menyatakan puncak-puncak difraksi milik fasa MgO.

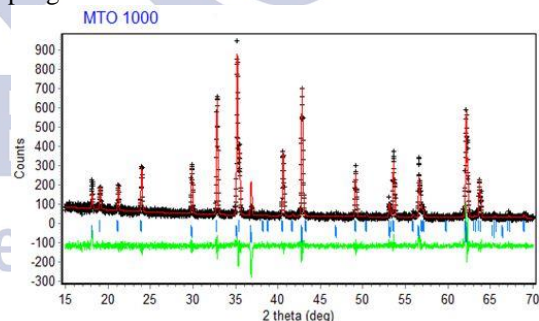


**Gambar 2.** Hasil identifikasi fasa untuk serbuk MTO hasil kalsinasi pada temperatur 1000 °C selama 4 jam.

Gambar 2 menunjukkan hasil identifikasi fasa untuk pola XRD serbuk MTO. Seperti yang terlihat pada Gambar 2, fasa-fasa yang teridentifikasi untuk serbuk MTO hasil kalsinasi pada temperatur 1000 °C adalah  $MgTiO_3$  (No. PDF 06-0494) sebagai fasa utama,  $Mg_2TiO_4$  (No. PDF 25-1157) dan MgO (No. PDF 45-0946), keduanya sebagai fasa sekunder. Dengan munculnya fasa  $Mg_2TiO_4$ , maka ini membuktikan bahwa metode pencampuran larutan dapat menghasilkan fasa  $Mg_2TiO_4$ . Munculnya fasa MgO tersebut mungkin disebabkan karena ion  $Mg^{2+}$  belum sempurna membentuk  $MgTiO_3$ .

### B. Analisis Struktur dan Komposisi Fasa

Analisis komposisi fasa (analisis kuantitatif) terhadap pola XRD untuk sampel uji pada penelitian ini dilakukan dengan metode *Rietveld* menggunakan program *Rietica*. Analisis kuantitatif bertujuan untuk mengetahui data komposisi fasa dari semua fasa yang teridentifikasi berdasarkan program *Match!* Data-data tersebut meliputi parameter kisi, % molar, volume sel satuan, dan densitas. Gambar 3 memberikan hasil penghalusan *Rietveld* untuk serbuk MTO 1000.



**Gambar 3.** Hasil penghalusan *Rietveld* dengan program *Rietica* untuk sampel MTO pada temperatur kalsinasi 1000 °C (FoM:  $GoF=2,39$ ;  $R_p=12,69$ ;  $R_{wp}=18,87$ ; dan  $R_{exp}=12,21$ ).

Seperti yang terlihat pada Gambar 3, simbol “+” pada gambar menunjukkan pola difraksi terukur (eksperimen), garis merah menunjukkan pola difraksi terhitung (model), garis hijau menunjukkan selisih intensitas antara pola difraksi model dengan pola difraksi eksperimen. Sedangkan garis-garis tegak kecil berwarna biru menunjukkan posisi puncak-puncak *Bragg* untuk semua fasa yang teridentifikasi berdasarkan program *Match!*

Rekapitulasi hasil penghalusan *Rietveld* untuk serbuk MTO 1000 ditunjukkan pada Tabel 1.

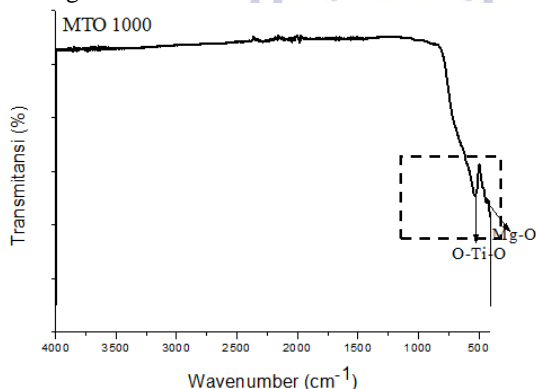
**Tabel 1.** Data komposisi fasa pada serbuk MTO 1000.

Parameter		Fasa Yang Teridentifikasi Pada Sampel		
		$MgTiO_3$	MgO	$Mg_2TiO_4$
Parameter Kisi (Å)	a=b	5.057	-	-
	c	13.906	-	-
	a=b=c	-	4.218	8.443
Volume sel satuan (Å <sup>3</sup> )		307.953 ± 0.035	75.019 ± 0.007	601.840 ± 0.063
%molar		39.93 ± 0.69	54.32 ± 1.50	5.75 ± 0.12
Densitas (g.cm <sup>-3</sup> )		3.887	3.567	6.192

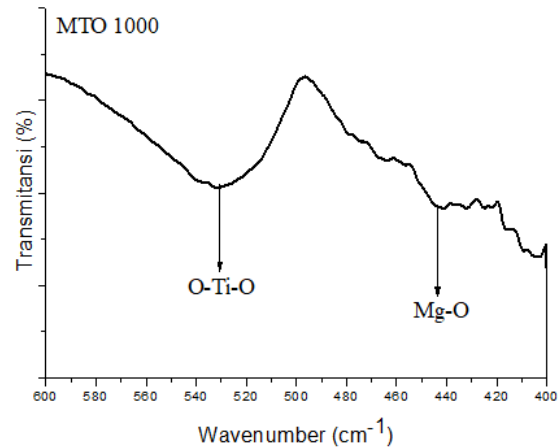
Seperti yang terlihat pada Tabel 1 dapat diperoleh informasi bahwa serbuk MTO 1000 mempunyai struktur atau bangunan yang terbuat dari fasa  $MgTiO_3$ , MgO, dan  $Mg_2TiO_4$ . Adapun persentase molar untuk masing-masing fasa pembangun serbuk tersebut adalah sebesar  $(39,93 \pm 0,69)\%$  untuk fasa  $MgTiO_3$ , fasa MgO sebesar  $(54,32 \pm 1,50)\%$  sedangkan fasa  $Mg_2TiO_4$  terbentuk sangat minor, yaitu  $(5,75 \pm 0,12)\%$ . Adanya fasa MgO yang masih teridentifikasi mengindikasikan bahwa MgO masih belum berubah membentuk  $MgTiO_3$ . Sedikitnya keberadaan fasa  $Mg_2TiO_4$  juga mengindikasikan bahwa pada temperatur 1000 °C fasa  $Mg_2TiO_4$  baru mulai terbentuk. Literatur (Ermawati et al., 2016) melaporkan bahwa fasa  $Mg_2TiO_4$  baru terbentuk pada temperatur di atas 1100 °C.

### C. Analisis Ikatan Kimia Uji FTIR

Karakterisasi FTIR bertujuan untuk mengetahui gugus ikatan kimia pada sampel uji. Gambar 4 menunjukkan hasil uji FTIR untuk serbuk MTO hasil kalsinasi pada temperatur 1000 °C selama 4 jam pada rentang bilangan gelombang 4000-400 cm<sup>-1</sup>. Perbesaran pada bilangan gelombang 600-400 cm<sup>-1</sup> diberikan pada Gambar 5. Terlihat pada gambar, FTIR merekam ada dua puncak adsorpsi, yakni pada bilangan gelombang 531 dan 446 cm<sup>-1</sup> terdapat pita vibrasi O-Ti-O dan Mg-O. Dengan adanya kedua vibrasi O-Ti-O dan Mg-O menunjukkan bahwa fasa  $MgTiO_3$  dan  $Mg_2TiO_4$  telah terbentuk sebab kedua fasa tersebut terbentuk akibat adanya vibrasi O-Ti-O dan Mg-O.



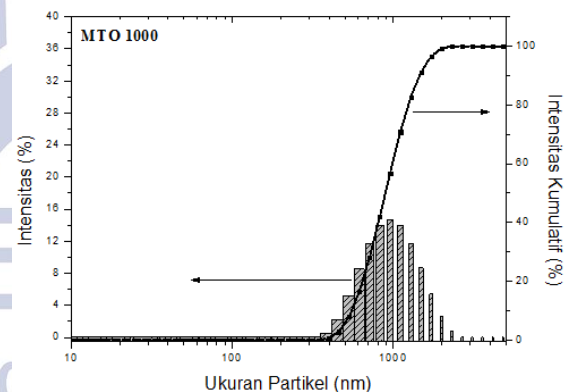
**Gambar 4.** Hasil uji FTIR untuk serbuk MTO hasil kalsinasi pada temperatur 1000 °C selama 4 jam pada rentang bilangan gelombang 4000 - 400 cm<sup>-1</sup>.



**Gambar 5.** Perbesaran spektrum FTIR pada Gambar 4 antara bilangan gelombang 600 - 400 cm<sup>-1</sup>.

### D. Analisis Distribusi Ukuran Partikel

Karakterisasi PSA bertujuan untuk mengetahui distribusi ukuran partikel pada sampel. Gambar 6 menunjukkan distribusi ukuran partikel pada serbuk MTO hasil kalsinasi pada temperatur 1000 °C selama 4 jam menggunakan PSA, Zetasizer Nano Series Software Version 7.01, Malvern Instrument. Hasil uji PSA berupa kurva dengan puncak tunggal dan dengan rentang ukuran partikel dari (458-1990) nm untuk serbuk MTO 1000 °C. Ukuran rata-rata partikel adalah sebesar 847 nm dengan deviasi sekitar 3% (Tabel 2). Berdasarkan fakta bahwa kurva distribusi berupa kurva dengan puncak tunggal dan nilai deviasi atau penyimpangan ukuran rata-rata kecil, yaitu <5%, maka dapat disimpulkan bahwa distribusi ukuran partikel yang ada pada serbuk MTO 1000 tersebut terdistribusi secara homogen.



**Gambar 6.** Distribusi ukuran partikel pada serbuk MTO hasil kalsinasi pada temperatur 1000 °C selama 4 jam.

**Tabel 2.** Distribusi ukuran partikel, Ukuran partikel rata-rata dan Deviasinya pada serbuk MTO 1000 °C.

Sampel	Distribusi Ukuran Partikel (nm)	Ukuran Partikel Rata-rata (nm)	Deviasi (%)
MTO	458-1990	847	3

## PENUTUP

### Simpulan

Dari penelitian yang telah dilakukan dapat disimpulkan bahwa sintesis serbuk  $Mg_2TiO_4$  (MTO)



dengan metode pencampuran larutan dapat menghasilkan fasa  $\text{Mg}_2\text{TiO}_4$ . Serbuk MTO 1000 °C memiliki struktur atau bangunan yang terbuat dari fasa  $\text{MgTiO}_3$ ,  $\text{Mg}_2\text{TiO}_4$ , dan  $\text{MgO}$ . Fasa  $\text{Mg}_2\text{TiO}_4$  terbentuk sebesar  $(5,75 \pm 0,12)\%$ . Ukuran partikel rata-rata pada serbuk MTO 1000 sebesar 847 nm dengan penyimpangan sekitar 3%, dapat disimpulkan bahwa distribusi ukuran partikel yang ada pada serbuk MTO 1000 terdistribusi secara homogen.

#### Saran

Untuk mendapatkan hasil yang terbaik, sebaiknya dilakukan uji TGA/DTA pada serbuk hasil sintesis untuk menentukan temperatur pembentukan fasa  $\text{Mg}_2\text{TiO}_4$ .

#### DAFTAR PUSTAKA

- Belous, A.G. 2001. "Physicochemical Aspects of the Development of MW Dielectrics and Their Use." *Journal of the European Ceramic Society* 21 (15): 2717–22. [https://doi.org/10.1016/S0955-2219\(01\)00351-X](https://doi.org/10.1016/S0955-2219(01)00351-X).
- Belous, Anatolii, Oleg Ovchar, Dmitrii Durilin, Marjeta Macek Krzmanc, Matjaz Valant, and Danilo Suvorov. 2006. "High-Q Microwave Dielectric Materials Based on the Spinel  $\text{Mg}_2\text{TiO}_4$ ." *Journal of the American Ceramic Society* 89 (11): 3441–45. <https://doi.org/10.1111/j.1551-2916.2006.01271.x>.
- Belous, Anatolii, Oleg Ovchar, Dmitrii Durylin, Matjaz Valant, Marjeta Macek-Krzmanc, and Danilo Suvorov. 2007. "Microwave Composite Dielectrics Based on Magnesium Titanates." *Journal of the European Ceramic Society* 27 (8–9): 2963–66. <https://doi.org/10.1016/j.jeurceramsoc.2006.11.022>.
- Bhuyan, Ranjan K., Thatikonda S. Kumar, Dobbidi Pamu, and Ajit R. James. 2013. "Structural and Microwave Dielectric Properties of  $\text{Mg}_2\text{TiO}_4$  Ceramics Synthesized by Mechanical Method." *International Journal of Applied Ceramic Technology* 10 (September): E18–24. <https://doi.org/10.1111/j.1744-7402.2012.02823.x>.
- Cheng, Lin, Peng Liu, Shi-Xian Qu, Lei Cheng, and HuaiWu Zhang. 2015. "Microwave Dielectric Properties of  $\text{Mg}_2\text{TiO}_4$  Ceramics Synthesized via High Energy Ball Milling Method." *Journal of Alloys and Compounds* 623 (February): 238–42. <https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2014.10.149>.
- Ermawati, F.U., S. Suasgoro, and Suminar Pratapa. 2015. "A Simple Dissolved Metals Mixing Route to Prepare Nanostructured  $\text{Mg}_{0.8}\text{Zn}_{0.2}\text{TiO}_3$  Solid Solution." *Advanced Materials Research* 1112 (July): 47–52. <https://doi.org/10.4028/www.scientific.net/AMR.1112.47>.
- Ermawati, F.U., Suminar Pratapa, S. Suasgoro, Thomas Hübert, and Ulrich Banach. 2016. "Preparation and Structural Study of  $\text{Mg}_{1-x}\text{Zn}_x\text{TiO}_3$  Ceramics and Their Dielectric Properties from 1 Hz to 7.7 GHz." *Journal of Materials Science: Materials in Electronics* 27 (7): 6637–45. <https://doi.org/10.1007/s10854-016-4610-6>.
- Petrova, M. A., G. A. Mikirticheva, A. S. Novikova, and V. F. Popova. 1997. "Spinel Solid Solutions in the Systems  $\text{MgAl}_2\text{O}_4$ – $\text{ZnAl}_2\text{O}_4$  and  $\text{MgAl}_2\text{O}_4$ – $\text{Mg}_2\text{TiO}_4$ ." *Journal of Materials Research* 12 (10): 2584–88. <https://doi.org/10.1557/JMR.1997.0343>.
- Silva, M. R. S., S. C. Souza, I. M. G. Santos, M. R. Cassia-Santos, L. E. B. Soledade, A. G. Souza, S. J. G. Lima, and E. Longo. 2005. "Stability Studied on Undoped and Doped  $\text{Mg}_2\text{TiO}_4$ , Obtained by the Polymeric Precursor Method." *Journal of Thermal Analysis and Calorimetry* 79: 421–424.
- Wechsler, Barry A., and Robert B Von Dreele. 1989. "Structure Refinement Of  $\text{Mg}_2\text{TiO}_4$ ,  $\text{MgTiO}_3$  and  $\text{MgTi}_2\text{O}_5$  by Time-of-Flight Neutron Powder Diffraction," 542–549.
- Xu, Lihua, Fang Lian, Juan Yang, and J.M.F. Ferreira. 2002. "A Novel Wet-Chemical Process to Synthesize  $\text{Ba}(\text{Mg}_{1/3}\text{Ta}_{2/3})\text{O}_3$  Nanopowders." *Ceramics International* 28 (5): 549–52. [https://doi.org/10.1016/S0272-8842\(02\)00008-1](https://doi.org/10.1016/S0272-8842(02)00008-1).
- Zhang, Mingming, Lingxia Li, Wangsuo Xia, and Qingwei Liao. 2012. "Structure and Properties Analysis for  $\text{MgTiO}_3$  and  $(\text{Mg}_{0.97}\text{Mn}_{0.03})\text{TiO}_3$  (M=Ni, Zn, Co and Mn) Microwave Dielectric Materials." *Journal of Alloys and Compounds* 537 (October): 76–79. <https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2012.05.026>.